



TITLE:

高強度レーザー電場による単原子層固体の高次高調波発生(Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

吉川, 尚孝

CITATION:

吉川, 尚孝. 高強度レーザー電場による単原子層固体の高次高調波発生. 京都大学, 2017, 博士(理学)

ISSUE DATE:

2017-09-25

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k20655>

RIGHT:

許諾条件により本文は2017-12-01に公開

京都大学	博 士（理 学）	氏名	吉川 尚孝
論文題目	高強度レーザー電場による単原子層固体の高次高調波発生		
<p>（論文内容の要旨）</p> <p>高強度のレーザー照射によって光と物質の相互作用が物質のエネルギーと同程度にまで大きくなると、非摂動論的な非線形光学現象が現れるようになる。そのような領域で起こる高強度高次高調波発生は、極端紫外線領域に至るまでの超広帯域コヒーレント光源を提供し、アト秒パルス生成を可能にするばかりでなく、その観測自体が強い光電場下での電子の運動を理解するための重要な知見である。高次高調波発生は1980年代後半に原子気体において初めて観測されて以降、精力的に研究が進められた。物理的機構の解明をベースにアト秒科学へと発展し、アト秒パルス生成、分子軌道のイメージング、アト秒領域の過渡吸収分光の実現といった成果が得られている。固体においては2010年にZnO結晶からの高次高調波発生が観測されて以降、いくつかの固体を対象に現在精力的に研究が行われている。固体からの高次高調波発生の物理的機構を記述する理論モデルがいくつか提唱されているが、統一的な理論は未だに得られていない。特に、高次高調波発生がバンド内を電子が駆動されることによる非線形電流によるものか、バンド間の非線形分極によるものか、双方が重要であるのかといったメカニズムが議論的になっている。</p> <p>本研究では、固体の高次高調波発生の物理的機構を明らかにするため、炭素一層からなる半金属のグラフェンとモリブデン原子と硫黄原子からなる単層半導体のMoS₂からの高次高調波発生の研究を行った。</p> <p>単層MoS₂に関してはその特徴的なスピン・バレーの物性と関連した低次のコヒーレントな光学過程について未解明な部分があるため、まず偏光分解発光およびラマン分光によってバレーコヒーレンスのメカニズムを明らかにした。1光子共鳴励起下において励起子発光とラマン散乱の偏光特性が非共鳴励起の場合と異なることを見出し、直線偏光保存に対応するバレーコヒーレンスがラマン的な共鳴2次光学過程であることを明らかにした。</p> <p>その上で高強度の中赤外光を励起光として、可視光や紫外光に至る高次高調波を測定した。単層MoS₂からは最大18次の高次高調波の観測に成功した。空間反転対称性の破れに由来して奇数次に加えて偶数次の高調波が観測された。特に偶数次高調波の強度に着目すると、van Hove 特異点に由来するバンド間遷移に共鳴するエネルギーの高調波が増強する様子が観測された。これは高次高調波発生の機構としてバンド内電流だけでなくバンド間の非線形分極が重要であることを示唆している。</p> <p>グラフェンにおいては最大9次の高次高調波を観測した。偏光特性を調べると、楕円偏光励起によって高調波が増強され、発生する高次高調波の偏光も大きく変化することを見出した。この実験で観測された特異な励起光楕円率依存性は、時間変化するバンド構造から高調波スペクトルを計算する理論によって再現することができた。理論モデルとの比較により、グラフェンのゼロギャップ性質に由来して高調波発生の初期過程であるイオン化過程が半金属的になり、その結果として特異な楕円率依存性が現れることが明らかになった。対照実験として単層MoS₂についても実験・理論両面から楕円率依存性を調べると、グラフェンとは全く異なる楕円率依存性が観測された。このことから、物質のバンドギャップの大きさが高次高調波発生の次数や偏光依存性に影響を与えていることがわかった。</p>			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は単原子層固体であるグラフェンと単層 MoS_2 において、高強度レーザー照射下での高次高調波発生を調べた研究である。固体の中でも単原子層固体からの高次高調波発生を測定することは、位相整合などの伝搬効果の影響を受けない本質的な極端領域の非線形光学現象を理解するために重要である。

単層 MoS_2 についてはその特徴的なスピン・バレーの性質に由来するバレーコヒーレンスと呼ばれる低次のコヒーレントな光学過程のメカニズムが不明であるため、本論文では、まずラマン散乱および励起子発光の偏光特性を詳細に調べている。共鳴励起において非共鳴励起と異なる偏光特性を発見し、バレーコヒーレンスがラマン的な共鳴2次光学過程として理解できることを示した。

高次高調波発生の実験では、中赤外領域の高強度光パルスで単原子層固体に照射し、可視光から紫外光領域に至る高次高調波を測定している。本論文においては、グラフェンおよび単層 MoS_2 は似た結晶構造を持ちながらバンドギャップや空間反転対称性の有無などの違いがあるという点に着目し、この2つの物質における高次高調波発生を比較している。グラフェンからは最大9次、単層 MoS_2 からは最大18次の高調波を観測し、励起光強度依存性から高調波発生が非摂動論的であることを確かめた。グラフェンの高次高調波発生は世界で初めての観測である。さらに、グラフェンにおいて、楕円偏光励起によって高調波が増強されるとともに偏光状態が変化することを見出した。バンド内とバンド間の両方の寄与を考慮した理論によって実験結果を再現し、この励起光楕円率依存性は原子気体では見られない、固体特有の高次高調波発生機構に基づいていることを明らかにした点は高く評価できる。有限ギャップを持つ単層 MoS_2 についても高次高調波発生励起光楕円率依存性を測定し、グラフェンとは全く異なる結果を得た。これは、固体の基本的なパラメータであるバンドギャップが高次高調波発生の性質に大きく寄与することを示す重要な結果である。さらに、単層 MoS_2 については偶数次の高調波が **van Hove** 特異点に由来するバンド間遷移に共鳴するエネルギーで増強することを明らかにした。この結果は高次高調波発生のメカニズムにバンド間の非線形分極が寄与していることを強く示唆するものであり、固体からの高次高調波発生の物理的機構を考える上で重要な知見である。

本研究によって明らかになった単原子層固体における高次高調波発生の知見は、高強度光電場における固体の非摂動論的な光学現象を明らかにする基礎物理研究として重要であるとともに、単原子層固体の次世代の超高速エレクトロニクス基幹材料としての利用や、赤外光の新しい検出法への応用を考える上でも大きな意義を持つものである。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成29年5月30日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。